

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2001-283888  
 (43)Date of publication of application : 12.10.2001

(51)Int.CI.  
 H01M 8/04  
 H01M 8/02  
 H01M 8/10

(21)Application number : 2000-090985  
 (22)Date of filing : 29.03.2000

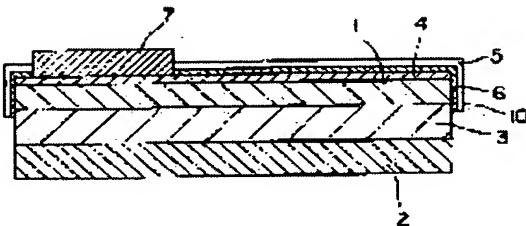
(71)Applicant : TOSHIBA CORP  
 (72)Inventor : AKASAKA YOSHIHIRO  
 OZU HIDEYUKI  
 TOMIMATSU MOROHIRO  
 NAKANO YOSHIHIKO  
 TAKASHITA MASAHIRO  
 YASUDA KAZUHIRO  
 SUMINO HIROYASU  
 YONEZU MAKI  
 HAYASE SHUJI  
 MIYAMOTO HIROHISA

## (54) FUEL CELL

### (57)Abstract:

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To provide a fuel cell which is particularly useful for a power source of small electric equipment and suitable for a small thin type battery cell that is improved in reliability for taking out the battery power for a long time stably and efficiently by preventing in particular leakage of liquid fuel.

**SOLUTION:** The fuel cell comprises a fuel electrode, an oxidant electrode disposed opposed to the fuel electrode, an electrolyte layer held by the fuel electrode and the oxidant electrode in between, and a liquid fuel holding portion which holds liquid fuel and supplies continuously the liquid fuel to the fuel electrode. A fuel leakage preventive membrane is installed at least at the side of the fuel electrode for preventing the leakage of fuel.



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]	11.09.2001
[Date of sending the examiner's decision of rejection]	04.03.2005
[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]	

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2001-283888

(P2001-283888A)

(43) 公開日 平成13年10月12日 (2001.10.12)

(51) Int.Cl.<sup>7</sup>

H 01 M 8/04

識別記号

F I

テ-マコト<sup>®</sup> (参考)

8/02

8/10

H 01 M 8/04

8/02

8/10

L 5 H 0 2 6

Z 5 H 0 2 7

S

審査請求 未請求 請求項の数22 O.L (全 9 頁)

(21) 出願番号

特願2000-90985(P2000-90985)

(22) 出願日

平成12年3月29日 (2000.3.29)

(71) 出願人 000003078

株式会社東芝

東京都港区芝浦一丁目1番1号

(72) 発明者 赤坂芳浩

神奈川県川崎市幸区小向東芝町1 株式会  
社東芝研究開発センター内

(72) 発明者 大岡秀行

神奈川県川崎市幸区小向東芝町1 株式会  
社東芝研究開発センター内

(74) 代理人 100064285

弁理士 佐藤一雄 (外3名)

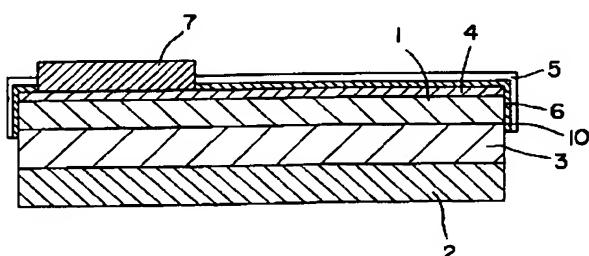
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 燃料電池

(57) 【要約】

【課題】 小型電気機器の電源として有用であり、特に液体燃料の漏洩を効果的に防止して、電池出力を長時間にわたり安定的かつ効率的に取り出すことができる信頼性の向上が図られた小型・薄型電池に特に好適な燃料電池を提供すること。

【解決手段】 燃料極と、前記燃料極に対向して配置された酸化剤極と、前記燃料極および酸化剤極に挟持された電解質層と、液体燃料を保持し、かつ、前記燃料極に前記液体燃料を継続的に供給することができる液体燃料保持部とを有し、少なくとも前記燃料極の側面に、液体燃料の漏洩を防止するための燃料漏洩防止膜が設けられてなることを特徴とする燃料電池。



## 【特許請求の範囲】

- 【請求項1】燃料極と、  
前記燃料極に対向して配置された酸化剤極と、  
前記燃料極および酸化剤極に挟持された電解質層と、  
液体燃料を保持し、かつ、前記燃料極に前記液体燃料を  
継続的に供給することができる液体燃料保持部とを有  
し、  
少なくとも前記燃料極の側面に、液体燃料の漏洩を防止  
するための燃料漏洩防止膜が設けられてなることを特徴  
とする、燃料電池。
- 【請求項2】前記燃料漏洩防止膜が、前記燃料極の表面  
側、および（または）液体燃料保持部の表面側および  
(または)側面側、および（または）燃料極と電解質層  
との間の界面部分の少なくとも一部を覆うように延在  
し、これらの構成部材を被覆するように設けられてい  
る、請求項1に記載の燃料電池。
- 【請求項3】前記燃料漏洩防止膜が、被覆部分の界面に  
前記液体燃料が浸出しない程度の融着状態に保持されて  
なる、請求項1に記載の燃料電池。
- 【請求項4】前記燃料電池に用いる燃料漏洩防止膜が、  
金属層を有機物層によって挟設した積層構造を有する、  
請求項1に記載の燃料電池。
- 【請求項5】前記燃料漏洩防止膜が、電気的絶縁性、耐  
薬品性、防湿性および熱の放出特性ならびに塑性変形性  
を有する、請求項1に記載の燃料電池。
- 【請求項6】前記燃料電池の燃料極側に燃料を供給する  
ための燃料供給孔が1または2以上設けられ、燃料供給  
後において前記燃料供給孔が密封可能に形成されてい  
る、請求項1に記載の燃料電池。
- 【請求項7】前記燃料電池の燃料極に設けられている燃  
料漏洩防止膜上に発生ガス放出口が設けられてなる、請  
求項1に記載の燃料電池。
- 【請求項8】前記燃料電池の酸化剤極側に酸化剤である  
空気および（または）酸素を供給するための酸化剤供給  
孔が1または2以上設けられている、請求項1に記載の  
燃料電池。
- 【請求項9】前記燃料電池の酸化剤極側に、生成水放出  
用液体・ガス分離膜が設けられてなる、請求項1に記載  
の燃料電池。
- 【請求項10】前記液体燃料を貯蔵するための燃料タン  
クをさらに具備し、該燃料タンクが電池本体内部に内包  
されてなる、請求項1に記載の燃料電池。
- 【請求項11】前記液体燃料を貯蔵するための燃料タン  
クをさらに具備し、該燃料タンクが電池本体の外部に外  
付けされてなる、請求項1に記載の燃料電池。
- 【請求項12】前記液体燃料を貯蔵するための燃料タン  
クをさらに具備し、該燃料タンクが金属材料により被覆  
されてなる、請求項1に記載の燃料電池。
- 【請求項13】前記燃料電池が、分割された複数の単位  
電池によって構成され、各単位電池は燃料漏洩防止膜を

融着することにより液、ガスシールされ各電池は外部リ  
ードにより電気的に接続されてなる、請求項1に記載の  
燃料電池。

【請求項14】燃料タンクが、一対の単位電池によって  
挟設されてなる、請求項1に記載の燃料電池。

【請求項15】電池の外周に燃料タンクが設けられてな  
る、請求項1に記載の燃料電池。

【請求項16】燃料タンクが、発電を必要とする装置本  
体に内蔵されてなる、請求項1に記載の燃料電池。

【請求項17】燃料タンクを折り曲げることにより燃料  
流路が開放され、これにより電池に燃料が供給されるよ  
うにしてなる、請求項1に記載の燃料電池。

【請求項18】電池収納カートリッジの蓋を開鎖すること  
により電池本体に内蔵されている燃料タンクと電池と  
が電気的に連結されて発電することが可能となる、請求  
項1に記載の燃料電池。

【請求項19】前記燃料電池の電圧端子が、燃料漏洩防  
止膜によって被覆されてなる、請求項1に記載の燃料電  
池。

【請求項20】燃料電池の起電部の外周に保温材が設け  
られてなる、請求項1に記載の燃料電池。

【請求項21】前記保温材の熱伝導率が、 $5 \times 10 - 3$   
 $W/mK \sim 10 W/mK$ の範囲である、請求項20に記  
載の燃料電池。

【請求項22】前記保温材の気孔率が10%~95%の  
範囲である、請求項20に記載の燃料電池。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は燃料電池に関し、特  
に小型化に好適な燃料電池に関するものである。

【従来の技術】燃料電池は、単独の発電装置としては効  
率的に有利なことから近年注目されている。燃料電池  
は、燃料としてガスを使用するリン酸型燃料電池、溶融  
炭酸塩型燃料電池、固体電解質型燃料電池、アルカリ性  
電解液型燃料電池等の燃料電池と、燃料として液体を使  
用するメタノール燃料電池、ヒドラジン燃料電池等の燃  
料電池とに大別される。これらの燃料電池はいずれも、  
主に電力用発電機や大型機器を動かすための動力源を対  
象にしているため、ガスや液体の燃料、あるいは酸化剤  
ガスを電池内に導入するためのコンプレッサやポンプ等  
が必要であり、システムとして複雑であるばかりでなく、  
これらの導入のために電力を消費する。

【0002】一方、これに対して、付加的な補器を削減  
して小型化への対応を図った燃料電池として、液体燃料  
の供給に毛管力を利用した液体燃料電池が、特開昭59  
-66066号公報や特開平6-188008号公報などに開示さ  
れている。これらの液体燃料電池は、燃料収容容器から  
液体燃料を毛管力で燃料極に供給するため、前記液体供  
給型燃料電池で必要であった液体燃料を圧送するための  
ポンプを必要としない。

【0003】ここで、小型化ないし薄型化された燃料電池においては、その機械的強度を維持するために金属製の缶などに封入して使用されることが多い。また、液体燃料であるメタノールは燃料極側で充分に改質しきれない場合があり、このため液体燃料が液体状態のまま外部に漏れ出したり浸出することにより起電部側面等を伝わって移動するという問題がある。このような燃料の漏洩は電池の出力特性の安定化を阻害する要因となる。特に、本発明者の知見によれば、燃料極の側面ないしその界面部分を介して酸化剤極側へ浸出する液体状態の燃料が出力特性の安定化を阻害する重要な要因となることが判明している。

【0004】従来、液体燃料の漏洩に対しては、締め付け治具等の部材によって機械的に気密保持する方法が提案されているが、金属部材等の締結による漏洩防止は構造的に複雑化し、電池の大型化やコストの点で不利である。さらに、締結手段による漏洩防止は必ずしも効果的とはいえない再漏洩の問題があり、さらに分子レベルでの液体燃料の浸出に対しては十分なものとはいえないのが現状である。

#### 【0005】

【発明が解決しようとする課題】本発明は上述した従来の燃料電池における問題に鑑みてなされたものであり、小型電気機器の電源として有用であり、特に液体燃料の漏洩の問題を効果的に解消して、電池出力を長時間にわたり安定的かつ効率的に取り出すことができる信頼性の向上が図られた小型・薄型電池に特に好適な燃料電池を提供することを目的とするものである。

#### 【0006】

【課題を解決するための手段】本発明による燃料電池は、燃料極と、前記燃料極に対向して配置された酸化剤極と、前記燃料極および酸化剤極に挟持された電解質層と、液体燃料を保持し、かつ、前記燃料極に前記液体燃料を継続的に供給することができる液体燃料保持部とを有し、少なくとも前記燃料極の側面に、液体燃料の漏洩を防止するための燃料漏洩防止膜が設けられてなることを特徴とするものである。

【0007】本発明の好ましい態様においては、燃料漏洩防止膜が、燃料極の表面側、および（または）液体燃料保持部の表面側および（または）側面側、および（または）燃料極と電解質層との間の界面部分の少なくとも一部に、これらの構成部材を被覆するように設けられている。

【0008】さらに、本発明の好ましい態様においては、燃料漏洩防止膜が、被覆部分の界面に前記液体燃料が浸出しない程度の融着状態に保持されてなる。

【0009】本発明においては、燃料電池に用いる燃料漏洩防止膜が、金属層を有機物層によって挟設した積層構造を有するものからなることができる。

#### 【0010】

さらに、上記燃料漏洩防止膜は、好ましく

は、電気的絶縁性、耐薬品性、防湿性および熱の放出特性ならびに塑性変形性を有する材料からなる。

【0011】また、本発明の別の態様においては、燃料電池の燃料極側に燃料を供給するための燃料供給孔が1または2以上設けられ、燃料供給後において前記燃料供給孔が密封可能に形成されていてもよい。

【0012】さらに、本発明においては、燃料電池の燃料極に設けられている燃料漏洩防止膜上に発生ガス放出口が設けられていてもよい。

【0013】本発明の燃料電池においては、燃料電池のカソード側に酸化剤である空気および／または酸素を供給するための酸化剤供給孔が1または2以上設けられていてもよい。

【0014】また、本発明においては、燃料電池のカソード側に、生成水放出用液体・ガス分離膜が設けられていてもよい。

【0015】さらに、本発明の燃料電池の別の態様においては、液体燃料を貯蔵するための燃料タンクをさらに具備し、該燃料タンクが電池本体内部に内包されてなる構成ならびに液体燃料を貯蔵するための燃料タンクをさらに具備し、該燃料タンクが電池本体の外部に外付けされてなる構成を包含する。

【0016】さらに、好ましい態様においては、液体燃料を貯蔵するための燃料タンクをさらに具備し、該燃料タンクが金属材料により被覆されていてもよい。

【0017】また、本発明においては、燃料電池が、分割された複数の単位電池によって構成され、各単位電池は燃料漏洩防止膜を融着することにより液、ガスシールされ各電池は外部リードにより電気的に接続されていてもよい。

【0018】さらに、本発明の別の態様においては、燃料タンクが、一対の単位電池によって挿設されてなる構成、あるいは、電池の外周に燃料タンクが設けられてなる構成を含む。

【0019】また、本発明の燃料電池においては、燃料タンクが、発電を必要とする装置本体に内蔵されていてもよい。

【0020】さらに、本発明の燃料電池においては、燃料タンクを折り曲げることにより燃料流路が開放され、これにより電池に燃料が供給されるようになっていてもよい。

【0021】さらに、本発明においては、電池収納カートリッジの蓋を閉鎖することにより電池本体に内蔵されている燃料タンクと電池とが電気的に連結されて発電する用になっていてもよい。

【0022】さらにまた、本発明の別の態様においては、燃料電池の電圧端子が、燃料漏洩防止膜によって被覆されてなる構成を含む。

【0023】本発明は、上記のような燃料電池と2次電池とが組み合わせて一体化されてなるハイブリッドタイ

ブ燃料電池を包含する。

【0024】さらに、本発明の好ましい態様においては、燃料電池の起電部の外周に保溫材がさらに設けられる。このような保溫材としては、その熱伝導率が、 $5 \times 10^{-3} \text{ W/mK}$ ~ $10 \text{ W/mK}$ の範囲が好ましく、さらに保溫材の気孔率は10%~95%の範囲であることが好ましい。

【0025】本発明においては、上記のような燃料漏洩防止膜が設けられていることにより効果的かつ簡易に液体燃料の漏洩ないし浸出を防止することができる。また、締め付け用治具等によって機械的に燃料漏洩防止のための気密保持を行う必要がないことから構造的に簡易であり、小型化および薄型化を図る上でも極めて有利である。また、構造上の制約がないため、起電部の有効面積を100%有効に利用することができ、起電力効率の点においても有利である。

【0026】さらに、本発明の好ましい態様においては、起電部の外周に保溫材を設けることによって電池反応の反応熱を外部に放散させることなく内部に閉じこめることによって室温近傍でも効率よく発電でき、起電部（燃料極、酸化剤極およびこれらに挿持された電解質）の外周に最適な熱伝導率と気孔率とを有する保溫材を設けることによって、長時間安定した出力を取り出すことが可能となる。

#### 【0027】

【発明の実施の形態】以下、本発明を好ましい実施の形態に即してさらに詳細に説明する。

【0028】図1の断面図に示すように、本発明による燃料電池は、燃料極1と、この燃料極1に対向して配置された酸化剤極2と、燃料極1および酸化剤極2に挿持された電解質層3と、液体燃料を保持し、かつ、前記燃料極1に前記液体燃料を継続的に供給することができる液体燃料保持部4とを有し、燃料極1、液体燃料保持部4、および燃料極1と電解質層3との間の界面部分における液体燃料の漏洩を防止するための燃料漏洩防止膜5が設けられる。図1中の符号7は燃料タンクである。

【0029】本発明のような燃料電池の場合、各電極を構成する多孔性の基体としては、正・負とも、カーボンペーパー、カーボンの成形体、カーボンの焼結体、焼結金属、発泡金属などの多孔性基体を撥水処理して使用することができ、この場合の撥水剤としてはポリテトラフルオロエチレン等を使用することができる。

【0030】燃料極1の材質としては、その貴金属触媒として、白金、白金合金、金、金合金、パラジウム、パラジウム合金などの貴金属の微粉末あるいは貴金属を担持したカーボン粉末を使用することができる。好ましくは、白金とルテニウムの混合物が使用できる。

【0031】また、酸化剤極2は、その貴金属触媒として、白金、白金合金、金、金合金、パラジウム、パラジ

ウム合金などの貴金属の微粉末あるいは貴金属を担持したカーボン粉末を使用することができる。

【0032】これら多孔性電極は、撥水処理をした多孔性基体の表面に、触媒分散溶液を塗布して作製することができる。この場合の触媒分散溶液は、白金ブラックなどの触媒の微粒子と、アルコールなどに溶解した固体高分子電解質を適当な溶媒中で均一に混合することによって調製することができる。

【0033】電解質層3としては、通常、パーフルオロスルホン酸膜、ポリベンズイミダゾール膜などが好ましく用いられる。

【0034】触媒層を形成した多孔性電極と固体高分子電解質膜は、ホットプレスなどの方法によって接合し一体化することができる。

【0035】さらに、液体燃料保持部4としては、ポリエステル、ポリオレフィンなどの多孔質有機物、カーボンやアルミニナなどの多孔質無機物、網状の金属多孔体などの多孔質材料を適宜用いることができる。

【0036】本発明の好ましい態様においては、燃料漏洩防止膜5が、燃料極1の表面および側面、液体燃料保持部4の表面ならびに燃料極1と電解質層3との間の界面部分の少なくとも一部を覆うように延在し、これらの構成部材を被覆するように設けられ、これら構成部材と前記燃料漏洩防止膜5とが、これら両者の界面に前記液体燃料が浸出しない程度の融着状態に保持されてなる。図9は、燃料電池を側面から見た断面図であり、外部リード20が配設された部分に融着部6が形成された態様の例である。

【0037】図1の断面図に示すように、燃料漏洩防止膜5の内側には、融着部6が形成されている。このように被覆される構成部材との間に融着部が形成されることによって、分子レベルでの液体燃料の浸出を効果的に防止することができる。このような融着部は加熱融着によって形成することができる。

【0038】本発明において使用される燃料漏洩防止膜5は、たとえばシート状を呈し、シート電池の外装を形成するものである。外装部材は、単一の材料で形成されていてもよいし、複数の材料によって形成されていてもよい。また、単一層構造を有していてもよいし、多層構造を有するものであってもよい。

【0039】具体的には、燃料漏洩防止膜としては、電気的絶縁性、耐薬品性、防湿性および熱の放出特性ならびに塑性変形性を有する材料が好ましく用いられ得る。燃料漏洩防止膜用材料の好ましい例としては、エポキシ樹脂、ポリエステル樹脂、ポリアミド樹脂、アクリル樹脂、ポリイミド樹脂、ポリベンズイミダゾール樹脂、オレフィン樹脂、フラン樹脂、シリコーン樹脂などが挙げられる。

【0040】さらに、燃料漏洩防止膜の好ましい例としては、樹脂材料を含む保護層と、金属材料を含む金属層

と、必要に応じて接着剤を含む接着剤層とを積層してなる多層構造を有するものが挙げられる。このように外装部材を多層構造で構成することによって、外傷に対する抵抗性を向上させることができ、さらに防湿性を向上させることができる。特に、多層構造中に金属層を含むことによって防湿効果は著しく向上する。

【0041】上記の好ましい構成において、保護層を形成する好ましい材料としては、ポリエチレン、ナイロン、ポリカーボネート、ポリアクリレート、液晶ポリエチレン、ポリフェニレンスルフィド、ポリスルホン、ポリエーテルエーテルケトン等のフィルムが挙げられる。また、金属層を形成する材料としては、アルミニウム、銅、ステンレス等の金属箔が挙げられる。バリヤ性および可塑性の点から特にアルミニウム箔が好ましい。

【0042】接着剤層を形成する材料としては、エチレン酢酸ビニル共重合体(EVA)、エチレンアクリル酸共重合体(EAA)、エチレンアクリル酸エチル共重合体(EEA)、変性ポリプロピレン樹脂等のオレフィン系ホットメルト系接着剤が好ましい例として挙げられる。

【0043】燃料漏洩防止膜の厚みは、その構造に拘らず、 $60\text{ }\mu\text{m} \sim 300\text{ }\mu\text{m}$ 程度に設定すればよい。また、外装部材の厚みは、一方のものと他方のものとで異なっていてもよい。燃料漏洩防止膜が上記の保護層と金属層と接着剤層とからなる積層体である場合においては、保護層は $10\text{ }\mu\text{m} \sim 100\text{ }\mu\text{m}$ 程度、金属層は $15\text{ }\mu\text{m} \sim 100\text{ }\mu\text{m}$ 程度、接着剤層は $30\text{ }\mu\text{m} \sim 100\text{ }\mu\text{m}$ 程度とすることが好ましい。

【0044】以下、本発明の様々な態様について説明する。

【0045】図2の平面図に示す燃料電池においては、電池本体に端子20が接続されており、電池本体の外周を被覆するように燃料漏洩防止膜21が積層されている。この態様においては、燃料電池の燃料極側に燃料を供給するための燃料供給孔22が設けられ、燃料供給後において前記燃料供給孔が密封可能に形成されている。また、この例においては、復生ガスとして生成する発生ガスを放出するための発生ガス放出口23も形成されている。

【0046】図3の態様においては、燃料漏洩防止膜21が設けられるとともに、燃料電池のカソード側に酸化剤である空気および／または酸素を供給するための酸化剤供給孔24を設けられている。さらに、図3の態様においては、燃料電池のカソード側に、生成水放出用液体・ガス分離膜25(破線で囲まれた領域)を設けることもできる。

【0047】図4に示す態様は、電池本体の内部に、起電部41とともに、液体燃料を貯蔵するための燃料タンク40が設けられてなる。

【0048】図5に示す態様は、電池本体Aの外部に燃

料タンク40が外付けされてなる。、請求項1に記載の燃料電池。なお、この場合の燃料タンク40は、機械的強度を保持するために該燃料タンクが金属材料により被覆されていてもよい。

【0049】また、本発明の燃料電池においては、燃料電池が、分割された複数の単位電池によって構成され、各単位電池は燃料漏洩防止膜を融着することにより液、ガスシールされ各電池は外部リードにより電気的に接続されていてもよい。

【0050】また、本発明においては、燃料タンクが、一対の単位電池によって挿設された構成や、電池の外周に燃料タンクが設けられている構成、あるいは、燃料タンクが、発電を必要とする装置本体に内蔵されている構成をも包含する。

【0051】さらに他の態様においては、燃料電池に付属する燃料タンクを折り曲げることにより燃料流路が開放され、これにより電池に燃料が供給されるようになっていてもよい。また、別の好ましい態様においては、電池収納カートリッジの蓋を閉鎖することにより電池本体内に内蔵されている燃料タンクと電池とが電気的に連結されて発電することが可能となるように構成されていてもよい。

【0052】さらにまた、燃料電池の電圧端子の少なくとも一部が、前述した燃料漏洩防止膜によって被覆されていてもよい。

【0053】本発明の燃料電池はそれ単独で電池としての使用が可能であるが、本発明の別の態様においては、本発明による燃料電池と他の2次電池とを組み合わせてハイブリッドタイプ燃料電池として適用することも可能である。

【0054】図6は、本発明の燃料電池の別の態様を示す断面図である。同図において、61は燃料浸透層、62が保温材、63は燃料気化部、64は燃料極、65は電解質、66は酸化剤極、67は酸化剤ガスの流路、68は燃料および酸化剤ガスの外部への揮散を防止するためのシール部材であり、69は起電部等を保護する目的で燃料電池を収容する収納容器である。また、この態様においても上述した所定の箇所に燃料漏洩防止膜(図示せず)が形成されている。

【0055】発電の機構を含めて、この態様について具体的に説明する。まず、液体燃料が外部から燃料浸透層61へと供給される。液体燃料の供給方法は、図6に示すように単に収容容器69に1つあるいは複数の孔を設けておき、そこから直接供給する方法、あるいは図7に示すように電池本体の外部に液体燃料収容容器72を準備しておき、そこから燃料浸透層61の毛管力を用いて引き込むなどの方法も可能である。燃料浸透材61はポリエチレン、ポリオレフィンなどの多孔質有機物、カーボンやアルミナなどの多孔質無機物、網状の金属多孔体などいずれの材料も許容される。燃料浸透層61へと供

給された燃料は、燃料気化部3で蒸発し起電部（燃料極64、電解質65、および酸化剤極66）へと気体の形で供給される。なお、気化部としては、物理的にある種の材料（上記燃料浸透材と同様の多孔質材料）が存在することも、あるいは燃料浸透材の単に穴のあいただけの空間であっても利用可能である。燃料極64へと供給された気化した液体燃料は、カーボン粒子で形成された燃料極内部のカーボン粒子に担持された白金あるいはその合金などに代表される燃料電池用触媒によって改質され、プロトンが取り出される。この燃料改質の際に電子が取り出される。取り出されたプロトンは隣接して設けられた電解質65を通じて酸化剤極6側へと伝達される。一方、酸化剤極6側では電解質65を通じて選ばれてきたプロトンが外部回路を通じて流れてきた電子、および酸化剤ガス（酸素や空気など）と反応して水になる反応が酸化剤極内部の白金などに代表される触媒上で進行する。以上のような反応が起こる過程で取り出される電子が外部回路を流れることで発電が起り、外部負荷を駆動することができる。

【0056】この発電に際し、先述したように燃料極64へと供給された気化した液体燃料が触媒により改質される際に反応熱が生成する。この熱が燃料極64の温度を上昇させ、触媒の活性を高めより容易に高い出力を取り出すことが可能となる。このことから、図6に示す小型燃料電池においては、反応熱を有効利用するために燃料浸透層61の外側と酸化剤ガス流路67の外側に保温材62が設置されている。この保温材62が設置されることにより反応熱の外部への揮散が防がれる効果をもたらす。これにより継続的に安定した出力を取り出すことが可能となる。

【0057】このような保温材の好ましい材質としては、有機、無機、金属あるいはそれらの複合材のいずれの材料も使用可能である。さらに、燃料極側と酸化剤極側が同じ材料でも、また異なる材料でも利用可能である。内部に反応熱を閉じこめるために設ける部材であるため、その熱伝導率は低いことが望ましく、 $10\text{W}/\text{mK}$ 、より好ましくは $1\text{W}/\text{mK}$ 以下であることが望ましい。一方、熱伝導率が $5 \times 10 - 3\text{W}/\text{mK}$ より低い材料を用いると発電部の温度上昇が著しくなり制御が困難で、安定した発電に不具合が生じる。より好ましくは $1 \times 10 - 2\text{W}/\text{mK}$ 以上である。

【0058】なお、本発明の好ましい態様においては、前記燃料極、液体浸透層、燃料気化層、および燃料極と電解質層との間の界面部分における液体燃料の漏洩を防止するための前述した燃料漏洩防止膜が設けられていてもよい。このような燃料漏洩防止膜は、燃料極の表面ないし側面、液体浸透層の表面ならびに燃料極と電解質層との間の界面部分の少なくとも一部に、これらの構成部材を被覆するように設けられ、これら構成部材と前記燃料漏洩防止膜とが、これら両者の界面に前記液体燃料が

浸出しない程度の融着状態に保持されてなることが特に好ましい。

#### 【0059】

【実施例】次に、本発明の燃料電池の具体例を製造例により詳細に説明する。なお、下記実施例は内容を理解することを容易にするため示すものであり、本発明の範囲を制限するものではない。

【0060】（実施例1）以下の手順に従って、図1に示す小型燃料電池を作製した。まず、外形 $100\text{mm} \times 80\text{mm}$ 、厚み $16\mu\text{m}$ のポリエステル製のフィルムと、外形が上記と同じで厚みが $20\mu\text{m}$ のアルミニウム製の金属箔とを、ウレタン系接着剤を用いてドライラミネート法により貼り合わせ、さらに金属箔の上に、エチレン酢酸ビニル共重合体（EVA）からなるホットメルト系接着剤を厚みが $0.050\text{mm}$ となるように予めフィルム化したもの接着剤により貼り合わせて燃料漏洩防止膜5を作製した。

【0061】収容する積層体は、燃料極と酸化剤極と電解質層が接合されたEMAと液体燃料保持部と燃料タンクであり、全体の厚みが $2\text{mm}$ となるように作製した。

【0062】このEMAは以下の手順で作製した。まず、カーボン粉末に液相法でPt-Ru系の触媒を担持させた。このカーボン粉末を回収後、アルゴン-水素気流中で焼成して触媒の安定化を行った。次にこの触媒粉末に溶剤とバインダーを添加してペースト状にし、カーボンクロス上に塗布して乾燥させて燃料極側の触媒層を形成した。また、別にPt系触媒を担持したカーボン粉末を燃料極側と同様のプロセスで作製し、やはり溶媒とバインダーを添加してペースト状にしてカーボンクロスに塗布し、乾燥させた。このようにして作製した燃料極と酸化剤極を $40\text{mm} \times 50\text{mm}$ にそれぞれ切断し、膜厚が $200\mu\text{m}$ の電解質膜（パーカルオロスルホン酸膜）を挟持した。これらを、 $135^\circ\text{C}$ で $15$ 分間、 $100\text{kPa}/\text{cm}^2$ の圧力でホットプレスして一体化することによってMEAが得られた。

【0063】燃料極には、横断面の形状が長円形（幅 $3\text{mm}$ 、厚さ $100\mu\text{m}$ ）、長さが $100\text{mm}$ 、材料がアルミニウムのリード端子を接続した。酸化剤極は、横断面の形状が長円形（幅 $4\text{mm}$ 、厚さ $50\mu\text{m}$ ）、長さが $100\text{mm}$ 、材料がニッケルのリード端子を接続した。

【0064】なお、この製造例においては、ヒートシールは、外装部材の外周から内側に $10\text{mm}$ までの部位で行っている。

【0065】このようにして得た小型燃料電池の封入容器の燃料極側にあけた燃料供給孔から、液体燃料としてメタノールと水の $1:1$ （重量比）混合液を燃料浸透層に供給した。酸化剤ガスは酸化剤ガス側の収容容器に設けた複数の空気取り入れ孔から自然拡散で供給した。この電池の $0.2\text{A}$ で電流を取り出した際の電圧特性を図8に示す。およそ $8$ 時間経過した後も安定した電圧を維

持しており、小型燃料電池として信頼性の高いものが作製できていることが確認できた。

【0066】(実施例2) 図6の断面図に示す構成を有する小型燃料電池を、以下に示す方法にしたがって作製した。

【0067】まず、カーボン粉末に液相法でPt-Ru系の触媒を担持させた。このカーボン粉末を回収後、アルゴン-水素気流中で焼成して触媒の安定化を行った。次にこの触媒粉末に溶剤とバインダーを添加してペースト状にし、カーボンクロス上に塗布して乾燥させて燃料極側の触媒層を形成した。また、別にPt系触媒を担持したカーボン粉末を燃料極側と同様のプロセスで作製し、やはり溶媒とバインダーを添加してペースト状にしてカーボンクロスに塗布し、乾燥させた。

【0068】以上のようにして作製した燃料極と酸化剤極を $40\text{mm} \times 50\text{mm}$ にそれぞれ切断し、膜厚が $200\mu\text{m}$ の電解質膜(パーフルオロスルホン酸膜)を挟持した。これらを、 $135^\circ\text{C}$ で15分間、 $100\text{kg}/\text{cm}^2$ の圧力でホットプレスして一体化した。この起電部2つを、燃料極側を共通になるよう向かい合わせて配置し、この燃料極2つに接するように燃料活性部3として直径 $8\text{mm}$ の穴を多数設けた燃料浸透層61(ポリオレフィン板、厚さ $2\text{mm}$ )を配置した。酸化剤極側には直径 $5\text{mm}$ の穴が多数設けられたテフロン(登録商標)シートを設置し、さらにその側に保温材62として気孔率65%、熱伝導率 $4 \times 10 - 2\text{W}/\text{mK}$ の厚さ $1\text{mm}$ のポリエチレン板を設置して全体をアルミニウム缶容器に封入した。電極にはNi箔を使用し、燃料極、酸化剤極それぞれのカーボンペーパーからシール部材の一部に設けた隙間から取り出した。

【0069】このようにして得た小型燃料電池の封入容器の燃料極側にあけた燃料供給孔から、液体燃料としてメタノールと水の1:1(重量比)混合液を燃料浸透層に供給した。酸化剤ガスは酸化剤ガス側の収容容器に設けた複数の空気取り入れ孔から自然拡散で供給した。この電池の0.2Aで電流を取り出した際の電圧特性を図8に示す。およそ12時間経過した後も安定した電圧を維持しており、小型燃料電池として信頼性の高いものが作製できていることが確認できた。

【0070】(比較例1)燃料漏洩防止膜を設けない以外は実施例1と同じ手法で作製した小型燃料電池について、実施例1と同様の方法で出力を取り出した際の電圧変化を測定した。その結果を図8に示す。実施例1と比較して約6時間後から電圧の低下が認められ、実施例1と比較して安定性に劣っていることが判明した。

【0071】(実施例3)図7に示した構成を有する小型燃料電池を、以下に示す要領で作製した。

【0072】まず、カーボン粉末に液相法でPt-Ru系の触媒を担持された。このカーボン粉末を回収後、アルゴン-水素気流中で焼成して触媒の安定化を行った。

次にこの触媒粉末に溶剤とバインダーを添加してペースト状にし、カーボンクロス上に塗布して乾燥させて燃料極側の触媒層を形成した。また、別にPt系触媒を担持したカーボン粉末を燃料極側と同様のプロセスで作製し、やはり溶媒とバインダーを添加してペースト状にしてカーボンクロスに塗布し、乾燥させた。以上のようにして作製した燃料極と酸化剤極を $40\text{mm} \times 50\text{mm}$ にそれぞれ切断し、膜厚が $200\mu\text{m}$ の電解質膜(パーフルオロスルホン酸膜)を挟持した。これらを、 $135^\circ\text{C}$ で15分間、 $100\text{kg}/\text{cm}^2$ の圧力でホットプレスして一体化した。この起電部2つを、燃料極側を共通になるよう向かい合わせて配置し、この燃料極2つに接するように燃料活性部3として直径 $8\text{mm}$ の穴を多数設けた燃料浸透層61(ポリオレフィン板、厚さ $2\text{mm}$ )を配置した。酸化剤極側には直径 $5\text{mm}$ の穴が多数設けられたテフロン(登録商標)シートを設置し、さらにその側に保温材62として気孔率65%、熱伝導率 $4 \times 10 - 2\text{W}/\text{mK}$ の厚さ $1\text{mm}$ のポリエチレン板を設置して全体をアルミニウム缶容器に封入した。電極にはNi箔を使用し、燃料極、酸化剤極それぞれのカーボンペーパーからシール部材の一部に設けた隙間から取り出した。

【0073】このようにして得た小型燃料電池の外側に設けた燃料収容容器から燃料浸透層の毛管力をを利用してメタノールと水の1:1(重量比)混合液を供給した。酸化剤ガスは酸化剤ガス側の収容容器に設けた複数の空気取り入れ孔から自然拡散で供給した。この電池の0.2Aで電流を取り出した結果、電圧0.65Vでおよそ24時間経過した後も安定した電圧を維持しており、小型燃料電池として信頼性の高いものが作製できていることが確認できた。

#### 【0074】

【発明の効果】上記実施例・比較例の結果からも明らかのように、本発明によれば、液体燃料の漏洩の問題を効果的に解消して、電池出力を長時間にわたり安定的かつ効率的に取り出すことができる信頼性の向上が図られた小型・薄型電池に特に好適な燃料電池を提供することができる。

#### 【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の実施例に係る燃料電池の断面図

【図2】本発明の実施例に係る燃料電池の平面図。

【図3】本発明の実施例に係る燃料電池の平面図。

【図4】本発明の実施例に係る燃料電池の平面図。

【図5】本発明の実施例に係る燃料電池の平面図。

【図6】本発明の実施例に係る燃料電池の断面図

【図7】本発明の実施例に係る燃料電池の断面図。

【図8】本発明の実施例および比較例の電圧特性を示すグラフ。

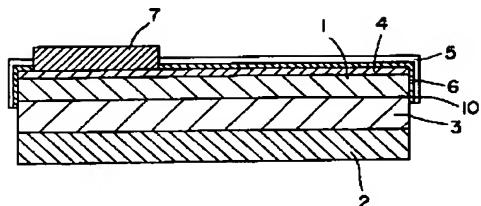
【図9】本発明の実施例に係る燃料電池の断面図。

#### 【符号の説明】

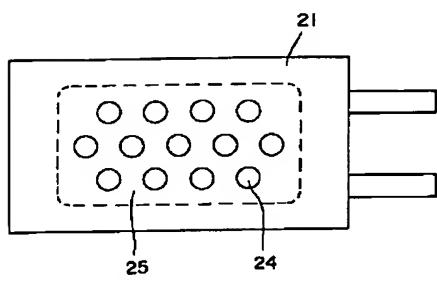
- 1 燃料極  
2 酸化剤極  
3 電解質層  
4 液体燃料保持部  
5 燃料漏洩防止膜

- 6 融着部  
7 燃料タンク  
20 端子（外部リード）  
22 燃料供給口  
23 発生ガス放出口

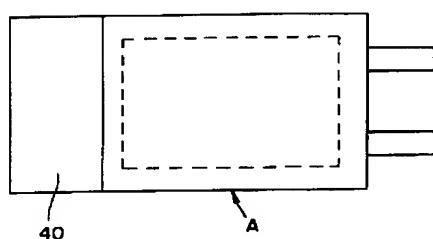
【図1】



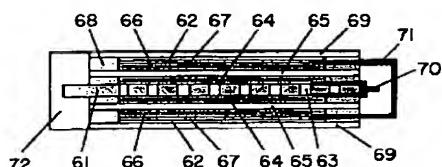
【図3】



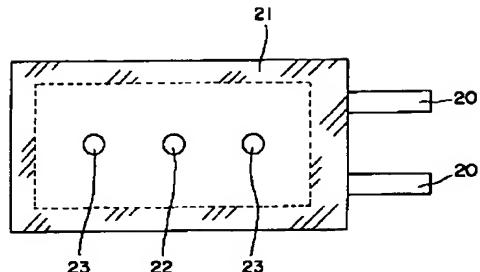
【図5】



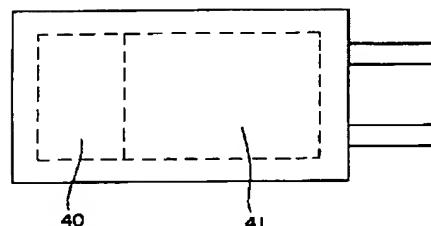
【図7】



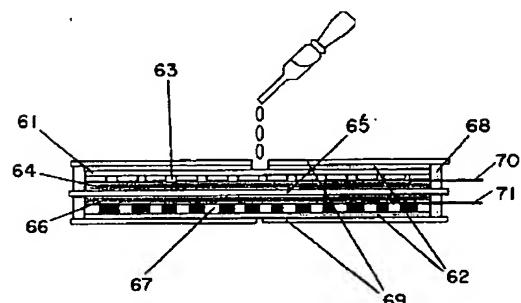
【図2】



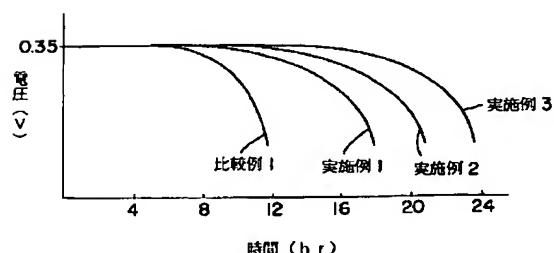
【図4】



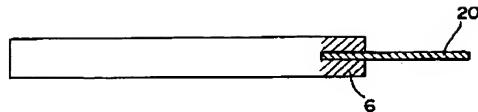
【図6】



【図8】



【図9】



## フロントページの続き

- |   |   |
|---|---|
| (72) 発明者 富 松 師 浩<br>神奈川県川崎市幸区小向東芝町1 株式会<br>社東芝研究開発センター内 | (72) 発明者 角 野 裕 康<br>神奈川県川崎市幸区小向東芝町1 株式会<br>社東芝研究開発センター内 |
| (72) 発明者 中 野 義 彦<br>神奈川県川崎市幸区小向東芝町1 株式会<br>社東芝研究開発センター内 | (72) 発明者 米 津 麻 紀<br>神奈川県川崎市幸区小向東芝町1 株式会<br>社東芝研究開発センター内 |
| (72) 発明者 高 下 雅 弘<br>神奈川県川崎市幸区小向東芝町1 株式会<br>社東芝研究開発センター内 | (72) 発明者 早 濑 修 二<br>神奈川県川崎市幸区小向東芝町1 株式会<br>社東芝研究開発センター内 |
| (72) 発明者 安 田 一 浩<br>神奈川県川崎市幸区小向東芝町1 株式会<br>社東芝研究開発センター内 | (72) 発明者 宮 本 浩 久<br>神奈川県川崎市幸区小向東芝町1 株式会<br>社東芝研究開発センター内 |
- F ターム(参考) 5H026 AA08 CX03 CX04 CX05 EE02  
EE05 EE18 EE19 HH00 HH04  
5H027 AA08